

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2003 年 7 月 10 日 (10.07.2003)

PCT

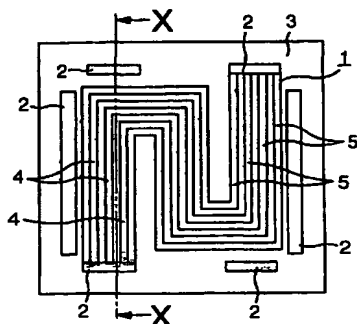
(10) 国際公開番号
WO 03/056648 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/02, 8/10 (72) 発明者: および
(21) 国際出願番号: PCT/JP02/13453 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 鈴木 孝幸 (SUZUKI, Takayuki) [JP/JP]; 〒316-0036 茨城県 日立市 鮎川町三丁目3番1号 日立化成工業株式会社 山崎事業所内 Ibaraki (JP). 田代 了嗣 (TASHIRO, Noriji) [JP/JP]; 〒316-0036 茨城県 日立市 鮎川町三丁目3番1号 日立化成工業株式会社 山崎事業所内 Ibaraki (JP).
(22) 国際出願日: 2002 年 12 月 24 日 (24.12.2002)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ:
特願 2001-398316 2001 年 12 月 27 日 (27.12.2001) JP
特願 2002-70383 2002 年 3 月 14 日 (14.03.2002) JP
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 日立化成工業株式会社 (HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒163-0449 東京都 新宿区 西新宿二丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP). (74) 代理人: 浅村 皓, 外 (ASAMURA, Kiyoshi et al.); 〒100-0004 東京都 千代田区 大手町 2 丁目 2 番 1 号 新大手町ビル 3 3 1 Tokyo (JP).
(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ,

[続葉有]

(54) Title: FUEL CELL-USE SEPARATOR

(54) 発明の名称: 燃料電池用セパレータ



(57) Abstract: A fuel cell-use separator having a bending breaking strain of at least 0.5%, or a compressive modulus of elasticity of up to 20 GPa, or a Shore hardness of 20-50, and, preferably made from a compact containing graphite and resin; and a fuel cell-use separator which consists of a compact containing graphite and resin and in which a total concentration of sodium, potassium, iron, nickel, magnesium eluting into immersion water after immersed for 100 hours in the water having 30 times the volume of the compact and kept at 80°C is up to 20 ppm and a sulfur concentration is up to 30 ppm; can produce a fuel cell that is excellent in the assembling integrity of a fuel cell stack and is not likely to deteriorate cell characteristics after an extended time of operation.

(57) 要約:

曲げ破断歪が 0.5% 以上、または圧縮弾性率が 20 GPa 以下、またはショア硬度が 20-50 の範囲で好ましくは黒鉛及び樹脂を含む成形体から作られた燃料電池用セパレータ、並びに黒鉛及び樹脂を含む成形体からなり、80°C に保った成形体体積の 30 倍の水に 100 時間浸漬した後の浸漬水中に溶出したナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの合計濃度が 20 ppm 以下及び硫黄の濃度が 30 ppm 以下である燃料電池用セパレータは、燃料電池スタックの組立健全性に優れ、長時間運転しても電池特性の劣化が生じ難い燃料電池を製造することができる。



TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA,
ZM, ZW.

添付公開書類:

— 国際調査報告書

- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 *PCT* ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

燃料電池用セパレータ

5 技術分野

本発明は、燃料電池用セパレータ、特に固体高分子型に適した燃料電池用セパレータ及び燃料電池用セパレータを用いた燃料電池に関する。

背景技術

- 燃料電池は近年、化石燃料の消費拡大による地球温暖化防止策、省エネルギー
10 対策等の観点から非常に注目され、特に固体高分子型の燃料電池について、定置型発電機、燃料電池自動車等への応用を目的に国内外の研究機関や企業で精力的な研究開発が進められている。

- 固体高分子型の燃料電池は、高分子イオン交換膜からなる電解質膜を触媒電極で挟み、さらにその外側にセパレータと呼ばれる板状の部材を配置した単セルが
15 基本単位となり、この電解質膜の片面に水素、メタノール等の燃料を供給し、反対の面には酸化剤である空気などを供給して、このときに生じる電気化学反応により電極間に発生する電気エネルギーを取り出すものである。なお、単セルの起電力は数百mVであることから、実際の機器に燃料電池を応用する際には、数百セルを積層したスタックの状態とすることが必要である。

- 20 この燃料電池の構成部材の一つであるセパレータは、燃料及び酸化剤を定量的かつ安定に面内に供給するための細かい流路が形成されている。

また、セパレータは発生する電気エネルギーを外部に伝達するための導電性、燃料と酸化剤が混合しないためのガス不透過性、単セルを多数積層し、圧縮、締結したときに破損しないための機械的特性等も必要とされる。

- 25 さらに、一つの燃料電池スタックに使用されるセパレータは数百枚の単位となることから、スタック全体をコンパクト化するために、セパレータの板厚を薄くしても上記特性を保つ必要があり、かつ一枚当たりのコストの低減も急務となっている。

しかし、上記に示されるような従来のセパレータは、多数積層した場合、セパ

レータ間をパッキングでシールする部位のガスシール性が確保できず、燃料や酸化剤の漏れが発生したり、積層体を締め付ける際に局部的に応力が高くなって破損が生じたり、面内での接触抵抗の不均一が生じ、電池特性が低下するというスタック組立時の健全性に問題が発生していた。

- 5 また、固体高分子型燃料電池においては、燃料と酸化剤の反応により水が生成する。そして、運転温度を一定温度に保つため、冷却水をスタック内に流通させる必要がある。さらに、電解質膜は十分水を含んだ状態で性能を発揮するため、必要に応じて水蒸気をスタック内に供給する必要もある。

- 10 このように、燃料電池においては水が燃料、酸化剤と共に重要な役割を果たすものであり、当然セパレータも水と接触した状態で使用される。運転時にセパレータから水中に不純物が溶出すると、電解質膜や触媒電極が汚染されて発電効率が低下したり、冷却水である純水の導電率が増加し、冷却水を通じてセル間が短絡することもある。このため、水への溶出分が少ないことも、セパレータの材質への重要な要求項目の一つとなっている。

- 15 セパレータの材料としては、これまでに大きく分けて金属、黒鉛材料、黒鉛粉／樹脂成形材が研究、開発されてきた。このうちの金属については、腐食による電気抵抗値の増大や金属イオンの溶出による電池特性劣化の問題があり、比重が大きいことからスタック重量も非常に重いものとなってしまう。

- 20 これまで研究開発の段階で多く使用されてきた人造黒鉛材料のセパレータは、等方性及び異方性の人造黒鉛ブロックより黒鉛板を切りだし、表面の流路を形成するためにプログラム制御の加工機で長時間かけてドリル加工を行う製造方法である。また、多孔質材であるために、加工後に樹脂含浸を実施してガス不透過性を付与する工程も不可欠であり、セパレータの単価は極端に高いものとなっていた。

- 25 これらに対し、国際公開番号WO 97/02612号明細書に示されるような黒鉛粉／樹脂成形材は、炭素粉や黒鉛粉と熱硬化性樹脂、熱可塑性樹脂等の混合物を原料として、熱圧成形、射出成形等の方法により流路構造を形成するもので、上記の2つの方法に比べ大幅なコスト低減が可能となり、将来的に燃料電池が普及した際の大量生産に対応できる方法である。

しかしながら、黒鉛粉／樹脂成形材により得られるセパレータは、樹脂により黒鉛粉を結合している構造のため、運転中に黒鉛粉と樹脂の間に水が進入し表面積が増大し易く、樹脂含浸の人造黒鉛材料セパレータに比べ樹脂含有量が多いことも相まって、金属不純物を始めとする水への溶出分が多い傾向にある。このため、成形セパレータを使用した燃料電池は、人造黒鉛材料セパレータを使用したものに比べ、運転時間が長くなると電池特性の劣化が生じやすくなることが多く、信頼性、耐久性に問題があった。

発明の開示

本発明は燃料電池スタックの組立健全性に優れた燃料電池用セパレータ及び／又は長時間運転しても電池特性の劣化が生じ難い燃料電池用セパレータ並びにこれを用いる燃料電池を提供するものである。

本発明は、曲げ破断歪みが0.5%以上である燃料電池用セパレータを提供する。

本発明はまた、圧縮弾性率が20GPa以下である燃料電池用セパレータを提供する。

本発明は更に、ショア硬度が20～50の範囲である燃料電池用セパレータを提供する。

本発明は更にまた、黒鉛及び樹脂を含む成形体からなり、80℃に保った成形体体積の30倍の水に100時間浸漬した後の、浸漬水中に溶出したナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの合計濃度が20ppm以下及び硫黄の濃度が30ppm以下である燃料電池用セパレータを提供する。

本発明はまた上記の燃料電池用セパレータを有してなる燃料電池を提供する。

図面の簡単な説明

図1A及び図1Bは本発明の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示す平面図である。

図2は図1AのX-X断面図である。

図3A及び図3Bは本発明の他の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示す平面図である。

図4は図3AのY-Y断面図である。

発明を実施するための最良の形態

本発明の燃料電池用セパレータ及び燃料電池の好ましい態様を述べれば以下の通りである。

- (1) . 曲げ破断歪みが0.5%以上である燃料電池用セパレータ。
- 5 (2) . 圧縮弾性率が20GPa以下である上記(1)記載の燃料電池用セパレータ。
- (3) . ショア硬度が20～50の範囲である上記(1)又は(2)記載の燃料電池用セパレータ。
- (4) . 圧縮弾性率が20GPa以下である燃料電池用セパレータ。
- 10 (5) . ショア硬度が20～50の範囲である上記(4)記載の燃料電池用セパレータ。
- (6) . ショア硬度が20～50の範囲である燃料電池用セパレータ。
- (7) . セパレータが、黒鉛及び樹脂を含む成形体である上記(1)～(6)のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。
- 15 (8) . 黒鉛及び樹脂を含む成形体からなり、80℃に保った成形体体積の30倍の水に100時間浸漬した後の、浸漬水中に溶出したナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの合計濃度が20ppm以下及び硫黄の濃度が30ppm以下である燃料電池用セパレータ。
- (9) . セパレータが、リブ部及び平坦部を有する上記(1)～(8)のいずれ
- 20 かに記載の燃料電池用セパレータ。
- (10) . 黒鉛が、膨張黒鉛である上記(7)又は(8)記載の燃料電池用セパレータ。
- (11) . 膨張黒鉛が、膨張黒鉛シート粉碎粉である上記(10)記載の燃料電池用セパレータ。
- 25 (12) . 樹脂が、熱硬化性樹脂である上記(7)又は(8)記載の燃料電池用セパレータ。
- (13) . セパレータが、リブ部及び平坦部以外に穴部を有する上記(1)～(12)記載の燃料電池用セパレータ。
- (14) . 上記(1)～(13)のいずれかに記載の燃料電池用セパレータを有

してなる燃料電池。

(15)．燃料電池が固体高分子型である上記(14)記載の燃料電池。

本発明における燃料電池用セパレータは、曲げ破断歪みが0.5%以上、好ましくは0.6%以上、さらに好ましくは0.7%~1.5%の範囲とされる。0.5%未満であると、セパレータをスタックに組み立てる際、面内の板厚のばらつきの大きいセパレータは、部分的に極端に変形が大きくなり、破断してしまう可能性が高くなる。

また、セパレータをスタックに組み立てる際に、強く締め付けられるが、このときにも強靱で破壊しないようにするためには、曲げ強度ではなく、曲げ破断歪みが重要である。さらに、セパレータ内に固体高分子膜やカーボンペーパーを挟むときに、密着性がよくなり、燃料電池としての性能をよくするために上記の曲げ破断歪みが重要である。

なお、本発明における燃料電池用セパレータは、その曲げ破断歪みが0.5%以上である場合は、その圧縮弾性率及びショア硬度については特に制限はないが、その圧縮弾性率は20GPa以下とすることが好ましく、15GPa以下とすることがより好ましく、0.5GPa~10GPaの範囲とすることがさらに好ましい。ショア硬度は20~50の範囲とすることが好ましく、20~45の範囲とすることがより好ましく、20~40の範囲とすることがさらに好ましい。

また、本発明においては、曲げ破断歪みが0.5%未満であっても、圧縮弾性率が20GPa以下、好ましくは15Pa以下、さらに好ましくは0.5GPa~10GPaの範囲であるか又はショア硬度が20~50の範囲、好ましくは20~45の範囲、さらに好ましくは20~40の範囲であれば本発明の目的を達成することができる。しかし、上記の範囲から外れた場合、即ち圧縮弾性率が20GPaを超えると荷重がかかる際の変形が生じ難くなるため、スタック組立の際に、板厚ばらつきの大きいセパレータではセパレータ間でのガスシール性が確保できなくなったり、電極又は隣り合うセパレータとの接触が悪くなり、接触抵抗が大きくなって発電効率が低下し易くなる。

なお、ショア硬度が20未満であると材質が柔らかくなりすぎるため、スタック組立時に板厚のばらつきが大きいセパレータでは、リブ部に非常に大きな偏荷

重がかかり、リブが破損する可能性がある。反対にショア硬度が50を超えると、材質が硬すぎて、板厚のばらつきが大きいセパレータに偏荷重がかかってもこれを緩和することができず、電極又は隣り合うセパレータとの接触抵抗が大きくなる。

- 5 一方、本発明におけるセパレータは、以上の物性を有する場合も、そうでない場合も、黒鉛及び樹脂を含む成形体を80℃に保った成形体体積の30倍の水に100時間浸漬し、その浸漬水に溶出する物質及びその濃度が、前記したようにナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの合計濃度が20ppm以下及び硫黄の濃度が30ppm以下であることが必要である。
- 10 本発明において、浸漬水の温度を80℃としたのは、一般的な固体高分子型燃料電池の使用温度に合わせたものである。また浸漬時間を100時間としたのは、浸漬液中の不純物量が十分飽和する時間であるため、安定した分析が可能となるからである。なお、浸漬の温度、時間共に±5%程度のずれは測定結果に影響を及ぼさないため、実際の測定においては±5%の範囲内で温度、時間が異な
- 15 っても実質的に請求範囲の条件とみなす。

- 浸漬する水の体積は、成形体が完全に水中に浸漬することが必要であるが、あまり多すぎると溶出された不純物の濃度が低下し、分析の精度が低下する。このような観点から、本発明において水の体積は、被分析物である成形体の30倍とした。なお、実際の測定において、加熱保持中に水の蒸発が生じ体積が減少する
- 20 場合には、浸漬後に減少した分の水を加え30倍の体積に戻すようにした。

水の体積は±5%程度ずれても不純物濃度分析の誤差範囲となる。従って、本発明でいう水の体積は、実際の測定において±5%の範囲内で異なっても、実質的に本発明に含まれる範囲の条件とみなす。

- 浸漬に使用する水は測定のバックグラウンドとなるため、不純物が多いと正確
- 25 な測定ができなくなるが、極端に純度の高い、所謂、超純水のレベルは不必要である。ナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの合計濃度が3ppm以下であることが望ましい。

本発明においては、浸漬水中に溶出したナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの金属不純物の合計濃度は20ppm以下及び硫黄の濃度は30

- p p m以下、好ましくは金属不純物の合計濃度は1 0 p p m以下及び硫黄の濃度は2 5 p p m以下、さらに好ましくは金属不純物の合計濃度は6 p p m以下及び硫黄の濃度は1 5 p p m以下とされ、それぞれ0 p p mであることが最も好ましく、いずれも上記の範囲を超える場合には、このセパレータを用いて組み立てた
- 5 燃料電池は、長時間運転すると性能が劣化する。

なお、これら金属不純物の分析は、誘導結合プラズマ発光分光法（I C P分析）、原子吸光光度計等の公知の分析方法で実施すればよく、特に分析方法に制限はない。

- 硫黄の分析についても、試料を燃焼させ発生ガスを捕集液中に採取し、イオン
- 10 クロマトグラフにより分析する等の公知の方法で実施すればよく、特に制限はない。

- 成形体（セパレータ）を、8 0℃に保ったセパレータ体積の3 0倍の水に1 0 0時間浸漬した後の、浸漬水中に溶出したナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウムの合計濃度を2 0 p p m以下及び硫黄の濃度を3 0 p p m以下にするには、灰分の少ない黒鉛を特に選択して使用する。灰分は、試料を高温（通常
- 15 8 0 0℃～1 0 0 0℃）の空气中で加熱して、炭素分を完全に燃焼させて得られた残留分（通常灰分と呼称される金属不純物の酸化物）の量として定義される。灰分が1重量%以下の黒鉛を使用することが好ましく、0. 3重量%以下の黒鉛を使用することがさらに好ましい。また、硫黄の濃度を3 0 p p m以下にするには、硫黄含有分が0. 5重量%以下の黒鉛を使用することが好ましく、0. 3重量%以下の黒鉛を使用することがさらに好ましい。
- 20

上記のような黒鉛は、例えば、黒鉛を高温で熱処理（必要に応じてハロゲンガス雰囲気とする）することにより得ることができる。

- 例えば、硫黄分の少ない膨張黒鉛シート粉碎粉を使用する場合、その作製工程
- 25 中、硫酸処理黒鉛の作製工程で水を加えた後の攪拌時間を1 0分以上、好ましくは2 0分以上とするとよい。また、酸処理に使用する装置、容器の材質は、金属不純物の溶出の少ないホーロー製のもの又はプラスチック製のものを使用することが好ましい。

セパレータの原料の一つとして使用する樹脂に対しても、金属不純物の含有量

が少ないものが好ましい。また、セパレータの作製工程で、成形後にとる賦形後の後硬化処理において、加熱処理を長く行う。

本発明における燃料電池用セパレータは、黒鉛及び樹脂を含む成形体からなるものである。セパレータの形状については特に制限はないが、リブ部及び平坦部
5 を有する構造のものが好ましい。リブ部は、導電性又は通電性を有し、セパレータを電解質膜、燃料極及び空気極を介して重ねたときにガスの流路を形成するものである。平坦部は、セパレータの周辺にあり、把持部を形成し、上記の流路をガスが通過するときにガス漏れしないように構成される。またリブ部は、セパレータを重ねたときに形成された流路をガスが通過するときにガス漏れしないよう
10 に構成される。平坦部は、セパレータを重ねたときに全体を固定するための把持部となることが好ましい。該平坦部を形成することにより、カーボンペーパー（電極）との密着性に優れるので好ましい。

さらに、本発明になる燃料電池用セパレータは、リブ部及び平坦部以外に穴部を有していてもよく、特に、平坦部内に穴部を有していることが好ましい。穴部
15 は、セパレータを多数重ねたときに、重ね方向に長い穴を形成するように構成され、水素ガス、酸素ガス及び冷却水を通すための穴が形成されるように構成される。そしてそれぞれの穴は、セパレータのリブ部によって形成される水素ガス流路、酸素ガス流路及び冷却水流路と連結されるように構成される。平坦部には、セパレータを重ねたときに固定用のボルトを通るための穴を有していてもよい。

20 上記の穴部、固定用のボルトを通るための穴を形成した場合、セパレータを重ねたり、締め付けたりするとき、穴部やボルトを通るための穴の周辺が破損したり、割れ易くなるという問題点がある。そのため、曲げ破断歪み、圧縮弾性率、ショア硬度が重要なファクターとなる。これらのうち、特に、曲げ破断歪みが重要なファクターである。従って、これらを規制することにより上記の問題点を防
25 止することができる。

本発明における燃料電池用セパレータは、上記において、平坦部のないものであってもよい。

セパレータの寸法は、燃料電池システムの用途、設計コンセプトに依存するが、概ね一辺の長さが4ないし6 cmから30 cm程度が一般的であり、板厚は0.

2 mm～6 mm程度である。

また、本発明になるセパレータの板厚のばらつきについては、特に制限はない。健全なスタックを組み上げるためには、板厚の面内ばらつきは、0.3 mm以下であることが好ましく、0.2 mm以下であることがより好ましく、0.1 mm
5 以下であることがさらに好ましく、差が全くないことが最も好ましいとされる。なお、上記の板厚とは、燃料電池用セパレータの厚さ、詳しくは図2及び図4に示す燃料電池用セパレータの底部（底面）6から平坦部3又はリブ部1の頂点までの厚さを指す。

本発明における燃料電池用セパレータは、黒鉛と樹脂を含む材料をセパレータ
10 形状に成形して得ることができる。特に黒鉛が樹脂中に分散された構造のものが、電気特性、成形性、ガスの不浸透性の点に優れ、安価であるので好ましい。前記黒鉛としては、特に制限はなくコストを重視するならば、天然黒鉛、人造黒鉛等を使用することが好ましい。成形体の製作については特に制限はないが、圧縮成形、射出成形等の公知の方法で成形することが好ましい。使用する黒鉛の粒径に
15 制限はなく、要求特性及び成形性を考慮し、粒径の異なる黒鉛を混合して使用することが好ましい。

また、軽量化、機械強度（靱性）、板厚精度を重視する場合、膨張黒鉛を使用することが好ましく、特に膨張黒鉛シート粉碎粉を使用することが好ましい。

ここに膨張黒鉛とは、原料黒鉛を酸性物質及び酸化剤を含む溶液に浸漬して黒
20 鉛層間化合物を生成し、これを加熱処理して黒鉛結晶のC軸方向に膨張させたものをいう。

本発明で好ましいものとして使用される膨張黒鉛シート粉碎粉は、膨張黒鉛粉をプレス、ロール等の方法で圧縮してシート形状とし、これを粉碎した粉体（後で詳述する）であり、必要に応じて分級を行う。シート化してから粉碎する理由
25 は、シート化しない膨張黒鉛粉は高密度が 0.05 g/cm^3 と非常に低いため、粉碎機での粉碎が困難となるからである。

前記リブ部及び平坦部は、それぞれ膨張黒鉛及び樹脂を含む層を有し、これらの層が連続している層であることが好ましい。これにより、セパレータを得るための成形時の成形性が良好であり、セパレータに軽量性を付与し、またセパレー

タに高靱性、低弾性という好ましい特性を付与する。

本発明で使用される膨張黒鉛は、原料黒鉛を、酸性物質及び酸化剤を含む溶液中に浸漬して黒鉛層間化合物を生成させる工程及び前記黒鉛層間化合物を加熱して黒鉛結晶のC軸方向を膨張させて膨張黒鉛とする工程により製造することができる。これにより膨張した黒鉛が虫状形となり方向性のない複雑に絡み合った形態となる。

膨張黒鉛の膨張倍率は、セパレータの強度とシール性を確保するため高い方が好ましく、特に制限はないが150倍以上であることが好ましく、150倍～300倍であることがさらに好ましい。

10 この膨張黒鉛を粉砕することにより膨張黒鉛粉とすることができるが、粉砕の前に、得られた膨張黒鉛に圧力を加えシート状に圧縮成形して膨張黒鉛シートとすることが好ましい。

前記の原料黒鉛としては特に制限はないが、天然黒鉛、キッシュ黒鉛、熱分解黒鉛等の高度に結晶が発達した黒鉛が好ましいものとして挙げられる。得られる特性と経済性のバランスを考慮すると天然黒鉛が好ましい。用いる天然黒鉛としては、特に制限はなく、F48C（日本黒鉛(株)製、商品名）、H-50（中越黒鉛(株)製、商品名）等の市販品を用いることができる。これらは、鱗片状の粉末の形態で使用するが好ましい。

原料黒鉛の処理に用いられる酸性物質は、一般に硫酸などの黒鉛の層間に進入して十分な膨張能力を有する酸性根（陰イオン）を発生することができるものが使用される。酸性物質の使用量については特に制限はなく、目的とする膨張倍率で決定され、例えば、黒鉛100重量部に対して100重量部～1000重量部使用するのが好ましい。

また、酸性物質と共に用いられる酸化剤としては、過酸化水素、過塩素酸カリウム、過マンガン酸カリウム、重クロム酸カリウム等の過酸化物、また硝酸などの酸化作用のある酸を用いることができ、良好な膨張黒鉛を得やすいという観点から過酸化水素が特に好ましい。酸化剤として過酸化水素を用いる場合、水溶液として用いることが好ましく、このとき、過酸化水素の濃度については特に制限はないが、20重量%～40重量%が好ましい。その使用量についても特に制限

はないが、黒鉛 100 重量部に対して過酸化水素水として 5 重量部～60 重量部配合することが好ましい。

酸性物質及び酸化剤は、水溶液の形態で使用することが好ましい。

- 酸性物質としての硫酸は、適宜の濃度で使用されるが、95 重量%以上の濃度のものが好ましく、濃硫酸を使用することが特に好ましい。

- なお、上記膨張黒鉛の層間化合物生成工程では、酸性物質として一般に硫酸が使用されるため、膨張黒鉛を原料とする黒鉛粉には硫酸根が残留し易く、他の一般的な人造黒鉛に比べ硫黄分を多く含有する。このため、硫黄分の低減や、導電率を低減するために、硫酸根を低減する処理を加えることが望ましい。この硫酸根低減の処理方法としては、300℃以上の温度で熱処理することが好ましい。

- また、熱処理の雰囲気は、大気中又は窒素などの不活性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。但し、大気中で行う場合は、熱処理温度が高くなると黒鉛の酸化が生じるため、300℃～500℃の温度で熱処理することが好ましい。一方、不活性ガス雰囲気下で行う場合は、上限温度については特に制限はない。
- 熱処理を行う場合の時期は、膨張直後、シート化した状態、粉碎後の何れの段階でもよく、特に制限はない。

- 前記において、膨張黒鉛シートの製法についても特に制限はないが、一般的には上記で得た膨張黒鉛を、プレス、ロール等で圧力を加えてシート化することが好ましい。膨張黒鉛をシート化したときのシートの厚さ及び嵩密度については特に制限はないが、厚さが 0.5 mm～1.5 mm の範囲及び嵩密度が $0.2 \text{ g/cm}^3 \sim 1.7 \text{ g/cm}^3$ の範囲のものが好ましい。厚さが 0.5 mm 未満であると得られる成形体が脆くなる傾向があり、1.5 mm を超えると成形性が悪くなる傾向がある。また嵩密度が 0.2 g/cm^3 未満であると電気抵抗が悪化する傾向があり、 1.7 g/cm^3 を超えるとシート作製時に膨張黒鉛が凝集破壊を起こし易く粉碎して使用した場合、機械強度が低下する傾向がある。なお密度の大きさは、加圧量、ロールギャップ等の調整により、調整することができる。

また、膨張黒鉛シートの粉碎は、粗粉碎及び微粉碎により行うことが好ましく、この後、必要に応じて分級を行う。

本発明において、原料としての膨張黒鉛の嵩密度については特に制限はないが、

0.05 g/cm³～1 g/cm³の範囲が好ましく、0.1 g/cm³～0.06 g/cm³の範囲がより好ましく、0.1 g/cm³～0.4 g/cm³の範囲がさらに好ましい。膨張黒鉛の密度が小さすぎると、樹脂との均一混合性が低下し、燃料電池用セパレータのガス不透過性が低下する傾向があり、膨張黒鉛の密度が大きすぎると燃料電池用セパレータの機械的強度及び導電性の向上効果が低下する傾向がある。嵩密度は、例えば、メスシリンダーに膨張黒鉛シート粉碎粉を一定量入れ、振動を与えて膨張黒鉛シート粉碎粉を充填したときの体積から算出して求めることができる。

膨張黒鉛シート粉碎粉の平均粒径についても特に制限はないが、樹脂との混合性及び成形性を考慮すると、数平均粒径で25 μm～500 μmの範囲が好ましく、50 μm～400 μmの範囲がより好ましく、70 μm～300 μmの範囲がさらに好ましい。粒径が25 μm未満であると膨張黒鉛粉の絡み合いの効果が少なくなり、セパレータの強度低下が起こり易くなる傾向があり、一方、粒径が500 μmを超えると幅の狭いリブへの膨張黒鉛の流れ性が悪化し、平板が薄くリブの高さが高いセパレータの成形が困難となる傾向がある。平均粒径は、例えば、(株)島津製作所製、SALD-3000J等の各種粒度分布測定装置により測定することができる。

本発明において、使用する樹脂の性状に特に制限はないが、安全性、製造工程の短縮（低コスト）等を考慮すると、乾式混合（無溶剤混合）が可能であり、かつ粒度分布が安定した熱硬化性樹脂、高耐熱性樹脂又は熱可塑性樹脂を用いることが好ましい。樹脂の使用形態としては粉末状、粒状等が好ましい。

また、使用する樹脂の化学構造、分子量及び種類に制限はなく、例えば、エポキシ樹脂（硬化剤が併用される）、メラミン樹脂、硬化性アクリル樹脂、レゾールタイプ及びノボラック型の粉末状フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂、粉末状ポリアミド樹脂、粉末状ポリアミドイミド樹脂、フェノキシ樹脂、アクリル樹脂等の高耐熱性樹脂又は熱可塑性樹脂が使用される。熱硬化性樹脂には必要に応じて、硬化剤、硬化促進剤等が併用して使用される。硬化剤及び硬化促進剤の使用形態は、粉末状、粒状等が好ましい。

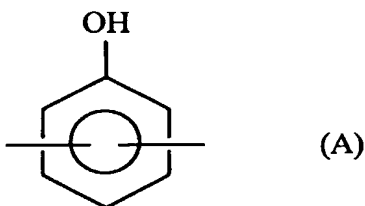
これらの樹脂の中で、経済性、作業性、硬化後の特性バランスが優れることか

ら、熱硬化性樹脂であるフェノール樹脂を用いることが好ましい。

- 樹脂として粉末状のフェノール樹脂を用いる場合、その粒度分布に特に制限はないが、乾式混合性を考慮すると、数平均粒径で $1\ \mu\text{m} \sim 1000\ \mu\text{m}$ の範囲が好ましく、 $5\ \mu\text{m} \sim 50\ \mu\text{m}$ の範囲がさらに好ましい。数平均粒径が
- 5 $1\ \mu\text{m}$ 未満の場合、粉末状フェノール樹脂を使用した場合、樹脂の凝集が問題となり、膨張黒鉛シート粉碎粉との均一混合が望めなくなる傾向があり、一方、数平均粒径が $1000\ \mu\text{m}$ を超える場合、上記と同様に均一な混合が難しくなり、得られる成形体の密度が部分的にばらつく傾向がある。

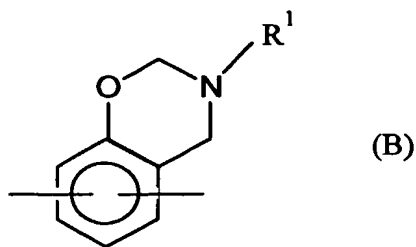
- フェノール樹脂としては、粉体特性として粒径が均一であり、またブロッキング
- 10 グ（粉の凝集）が少なく、反応時に発生ガスが少なく成形が容易であり、熱処理が短時間で終了する等の特長を備えたフェノール樹脂が好ましく、中でも開環重合により重合するジヒドロベンゾオキサジン環を含むフェノール樹脂〔一般式（A）及び（B）に示す化学構造単位を有する〕を用いることが好ましい。

15



- （式中、芳香環に結合する水素はヒドロキシル基のオルト位の1つを除き、炭素
- 20 数1～3のアルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルコキシル基で置換されたフェニル基の炭化水素基で置換されていてもよい）。

25



（式中、 R^1 は、炭素数1～3のアルキル基、シクロヘキシル基、フェニル基又は炭素数1～3のアルキル基若しくはアルコキシル基で置換されたフェニル基の

炭化水素基であり、芳香環に結合する水素は、上記式（A）と同様の炭化水素基で置換されていてもよい）。

樹脂として粉末状フェノール樹脂を用いる場合、その粒度分布に特に制限はないが、膨張黒鉛シート粉碎粉との乾式法により短時間で、均一に混合できる混合
5 性と、成形時の樹脂流れを考慮すると、数平均粒径で $1\ \mu\text{m}\sim 100\ \mu\text{m}$ の範囲が好ましく、 $5\ \mu\text{m}\sim 50\ \mu\text{m}$ の範囲がさらに好ましい。

本発明で使用する膨張黒鉛と樹脂との混合割合は、目標とする最終成形体である燃料電池用セパレータの諸特性の値を考慮して決定される。通常混合比率で膨張黒鉛／樹脂＝ $95/5\sim 40/60$ （重量比）の範囲が好ましく、 $95/5\sim$
10 $30/70$ （重量比）の範囲がより好ましく、 $90/10\sim 50/50$ （重量比）の範囲がさらに好ましく、 $85/15\sim 60/40$ （重量比）の範囲が最も好ましい。ここで膨張黒鉛と樹脂との混合比率が $95/5$ を超える場合、機械強度が急激に低下する傾向があり、一方、 $40/60$ 未満の場合、導電性物質である膨張黒鉛の添加量が少なく、電気特性が悪化する傾向がある。

15 膨張黒鉛と樹脂の混合方法に特に制限はなく、膨張黒鉛の微粉化を防止する点で混合時の膨張黒鉛に大きな剪断力が加わらないシェイカー、Vブレンダー等を使用した乾式混合方法によることが好ましい。混合時に膨張黒鉛が微粉化した場合、得られる燃料電池用セパレータの機械強度が急激に低下する傾向がある。

また、燃料電池用セパレータへの成形に際し、上記混合粉を直接、成形材料粉
20 として成形に供することができるが、さらなる混合性の向上と成形時の作業性を向上させるために、混合粉を加圧成形しシート状にしたもの（以下、「成形用シート」という）を成形に供することが好ましい。

成形用シートの製造法に特に制限はないが、例えば混合物投入タンク、材料を一定厚さにするゲート調整機、一定幅に仕上げるスリッター、前記加工材料を移送する移送装置、シート化する圧延ロール等から構成される成形用シートの製造
25 装置等を使用することができる。平坦部に穴部を有する場合、成形用シートに穴部が形成されているようにすると好ましい。

成形用シートは、その強度を向上させるために成形用シートに含まれる樹脂の硬化反応を部分的に進めるか、部分的に（完全にではなく）熱溶解させてからセ

パレータの製造に供することができる。硬化反応又は熱溶融させる方法に制限はないが、例えば、得られた成形用シートを加熱する方法、さらに具体的には前記の圧延ロールを加熱装置が付属されたものとし、この圧延ロールを通すときに加熱する方法、得られた成形用シートを加熱オープンに通す方法等がある。

- 5 前記、成形体（燃料電池用セパレータ）を得るための成形方法については特に制限はないが、成形機のコスト、得られる成形体の板厚精度、電気特性及び機械特性を決定づける樹脂中における膨張黒鉛粉の最適な配向等を考慮すると圧縮成形法が好ましい。

- 10 なお成形する際、一般にリブ部と平坦部で、単位面積当たりの原料の装填量が同じ場合、平坦部の嵩密度は低くなる。このためリブ部及び平坦部の嵩密度を同時に上記の範囲にするためには、材料の装填量を変える必要があり、例えば、必要に応じて成形体の平坦部の形状に合わせた成形用シートを追加したり又は強度向上の役割も兼ねたガラスクロスなどの補強シートを成形用シートに重ね合わせて使用してもよい。
- 15 得られる燃料電池用セパレータの嵩密度については特に制限はないが、例えば、平坦部の嵩密度は 1.35 g/cm^3 以上が好ましく、 $1.40 \text{ g/cm}^3 \sim 1.75 \text{ g/cm}^3$ の範囲がさらに好ましい。またリブ部の嵩密度は 1.35 g/cm^3 以上が好ましく、 $1.45 \text{ g/cm}^3 \sim 1.75 \text{ g/cm}^3$ の範囲がさらに好ましい。上記の嵩密度を有することにより十分な機密性を保つことができる
- 20 と共に、板厚精度に優れるので好ましい。

- 本発明において、燃料電池用セパレータの曲げ破断歪みを 0.5% 以上、圧縮弾性率を 20 GPa 以下又はショア硬度を $20 \sim 50$ の範囲にするためには、例えば、原料として使用する膨張黒鉛シート粉砕粉などの成形材料の粒径とそれに見合った樹脂の配合割合、成形用金型への成形材料と樹脂の混合物の装填量、成形圧力等を調整して適切な条件を見い出すことにより達成できる。
- 25

燃料電池は、本発明におけるセパレータにより、固体高分子電解質膜などからなる電解質層及びこれを挟むようにして形成されるセルを必要数積層された構造を有する。本発明におけるセパレータは、電解質の種類によって分類されるアルカリ型、固体高分子型、リン酸型、溶融炭素塩型、固体酸型等の燃料電池のセパ

レータとして使用でき、特に固体高分子型燃料電池に使用することが好ましい。

上記に示すような構造にすることにより、組立健全性に優れる他、板厚精度、ガス不透過性、電気特性、機械強度等についても問題のない燃料電池用セパレータ及び燃料電池が得られる。

- 5 以下、本発明の実施例の形態を図面により説明する。

- 図1 A及び1 Bは、本発明の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示す平面図、図2は、図1 AのX-X断面図、図3 A及び図3 Bは、本発明の他の一実施例になる燃料電池用セパレータの形状の一例を示す平面図、並びに図4は、図3 AのY-Y断面図である。図中1はガスと冷却水の供給路を確保する
10 ためのリブ（溝）を有するリブ部、2はガスと冷却水を供給するための穴部、3は平坦部、4は突起部、5は溝部及び6は底部（底面）である。

以下、実施例により本発明を説明する。

実施例 1

（1）成形用混合粉の製造

- 15 板厚が1.0 mm及び嵩密度が1.0 g/cm³の膨張黒鉛シート（日立化成工業（株）製、商品名カーボフィットHGP-105）を粗粉碎機及び微粉碎機で粉碎し、目開き425 μmのフルイを通して粗粉を除去し、灰分が0.6重量%及び硫黄分が0.12重量%で、平均粒径が250 μmの膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。この膨張黒鉛シート粉碎粉と前記一般式（A）及び（B）に示す化学
20 構造単位を有する数平均粒径が20 μmの粉末状フェノール樹脂（日立化成工業（株）製、商品名HR1060）を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂が70：30の割合で配合し、Vブレンダーで乾式混合して混合粉を得た。

（2）燃料電池用セパレータの製造

- 25 次に、図1 A、図1 B、図2、図3 A、図3 B及び図4に示す形状の燃料電池用セパレータを得るために金型を使用した。このうち図1 A、図1 B及び図2に示す形状のセパレータを得るための下型〔成形後図1 B（裏面）となる部分〕を、成形面（縦、横200 mm）が平坦な型とし、上型〔成形後図1 A（表面）となる部分〕を、突起部を有する型とした。ただし、上型は、成形後リブの高さが0.

6 mm、リブピッチが2 mm、リブの幅が2 mm及びリブテーパが10度になるような形状とした。なおリブ部1が形成される領域は中央部の150 mm×150 mmとした。

一方、図3 A、図3 B及び図4に示す形状のセパレータを得るための下型〔成形後図3 B（裏面）となる部分〕及び上型〔成形後図3 A（表面）となる部分〕の両金型を突起部を有する型とした。このうち下型は、成形後リブの高さが0.6 mm、リブピッチが6 mm、リブの幅が6 mm及びリブテーパが10度になるような形状とした。また上型は、図1 A、図1 B及び図2に示す形状のセパレータを得るための上型と同じ形状とした。

10 (1) で得た混合粉を圧延ロールを有するシート成形機を用いて成形し、単位面積当たりの重量が 0.23 g/cm^2 で、寸法が200 mm×200 mm及び厚さが5 mmの成形用シートを得た。

また、上記と同様のシート成形機を用いて単位面積当たりの重量が 0.09 g/cm^2 で、寸法が200 mm×200 mm及び厚さが5 mmの成形用シートを作製し、その中央部の150 mm×150 mmの領域をくり抜いた。

この後、図1 A、図1 B及び図2に示す形状のセパレータを得るための下型を180℃に加熱し、この下型に前記で得た成形用シートを1枚載置した後、さらにその上に中央部をくり抜いた成形用シートを1枚載置した。その後、その上部に上型の突起部を有する部分を下に向けてセットし、得られる成形体の板厚が1.9 mmになるような条件、即ち180℃、面圧19.6 MPa ($2 \times 10^6 \text{ kg/m}^2$) の条件で10分間成形し、次いで、平坦部3の6カ所に穴部2を簡易打ち抜き機で打ち抜いて図1 A、図1 B及び図2に示す形状の燃料電池用セパレータ(a)を52枚得た。なお図1 A、図1 B及び図2において、4は突起部、5は溝部及び6は底部（底面）である。

25 一方、図3 A、図3 B及び図4に示す形状の燃料電池用セパレータ(b)52枚も前記と同様の工程を経て得た。燃料電池用セパレータ(b)の板厚は2.0 mmであった。

また、得られた燃料電池用セパレータ(a)のリブ部の嵩密度は 1.44 g/cm^3 及び平坦部の嵩密度は 1.68 g/cm^3 であり、燃料電池用セパレータ

(b) のリブ部の嵩密度は 1.58 g/cm^3 及び平坦部の嵩密度は 1.60 g/cm^3 であった。なお、以下の実施例及び比較例において、燃料電池用セパレータ (a) 及び (b) の板厚、リブ部の嵩密度及び平坦部の嵩密度は上記と同じ値である。

5 実施例 2

実施例 1 の (1) で得た膨張黒鉛シート粉碎粉を、さらに目開き $180 \mu\text{m}$ のフルイを通して粗粉を除去し、平均粒径が $130 \mu\text{m}$ の膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。以下実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を、各々 52 枚ずつ得た。

10 実施例 3

実施例 1 の (1) で得た膨張黒鉛シート粉碎粉を、さらに目開き $106 \mu\text{m}$ のフルイを通して粗粉を除去し、平均粒径が $83 \mu\text{m}$ の膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。以下実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を、各々 52 枚ずつ得た。

15 実施例 4

実施例 1 の (1) で得た平均粒径が $250 \mu\text{m}$ の膨張黒鉛シート粉碎粉と実施例 1 の (1) で用いた数平均粒径が $20 \mu\text{m}$ の粉末状フェノール樹脂を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂が 75 : 25 の割合で配合し、V ブレンダーで乾式混合して混合粉を得た以外は、実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を、各々 52 枚ずつ得た。

比較例 1

実施例 2 で得た平均粒径が $130 \mu\text{m}$ の膨張黒鉛シート粉碎粉と実施例 1 の (1) で用いた数平均粒径が $20 \mu\text{m}$ の粉末状フェノール樹脂を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂を 65 : 35 の割合で配合し、V ブレンダーで乾式混合して混合粉を得た以外は、実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を、各々 52 枚ずつ得た。

比較例 2

実施例 3 で得た平均粒径が $83 \mu\text{m}$ の膨張黒鉛シート粉碎粉と実施例 1 の

(1) で用いた数平均粒径が $20\ \mu\text{m}$ の粉末状フェノール樹脂を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂を 65 : 35 の割合で配合し、Vブレンダーで乾式混合して混合粉を得た以外は、実施例 1 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を、各々 52 枚ずつ得た。

- 5 次に、前記の各実施例及び各比較例で得た燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) の全数について、縦、横 4 点ずつ合計 16 点について、マイクロメータを用いて板厚を測定し、1 枚のセパレータ面内での板厚のばらつき (最大厚さと最小厚さの差) を求めた。これら 100 枚のセパレータのばらつきの平均値と最大値及び最小値を表 1 に示す。

- 10 また、前記の実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 ~ 2 で得た燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を各々 2 枚ずつ用い、各セパレータの平坦部から、 $50\text{mm} \times 10\text{mm}$ の試片を 5 枚及び $20\text{mm} \times 20\text{mm}$ の試片を 2 枚作製し、以下に示す特性を求めた。

- 15 上記の試片のうち $50\text{mm} \times 10\text{mm}$ の試片を用いて、オートグラフ (島津製作所製 S-500) により支点間距離 40mm で 3 点曲げ試験を行い、破断時の変形量から治具、装置の歪み量を除いて曲げ破断歪みを算出した。なお参考値として曲げ強度も求めた。また D 型ショア硬度計 (仲井精機製作所製) を使用し、上記破断後の試片についてのショア硬度を求めた。

- 20 次に、上記のオートグラフを使用し、 $20\text{mm} \times 20\text{mm}$ の試片について圧縮試験を実施し、荷重に対する変形量の関係を求めた。この変形量から治具、装置の歪み量を除いて圧縮弾性率を算出した。これらの特性をまとめて表 1 に示す。

また、前記の実施例 1 ~ 4 及び比較例 1 ~ 2 で得た燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を用いて燃料電池を組立て、電池特性を確認した。

- 25 先ず、白金触媒を担持したカーボン粉及びパーフルオロスルホン酸粉末をエタノールに分散させてペーストを作製し、これをカーボンペーパーに均一に塗布し電極触媒層を形成した。このペーストを塗布したカーボンペーパー 2 枚を 150mm 角に切断し、ペースト面が内側になるようにして厚さ $50\ \mu\text{m}$ のパーフルオロスルホン酸膜 (デュポン社製、商品名ナフィオン) を挟み込み、加熱しながら

圧着して膜電極複合体 (MEK) を作製した。

次に、各実施例及び各比較例で得た図 1 A、図 1 B 及び図 2 に示す形状の燃料電池用セパレータ (a) 並びに図 3 A、図 3 B 及び図 4 に示す形状の燃料電池用セパレータ (b) を各各 50 枚用い、前記 MEK を図 1 A に示す燃料電池用セパレータ (a) の面 (表面) と図 3 A に示す燃料電池用セパレータ (b) の面 (表面) の間に挟み込み、両セパレータのリブ部 1 及び穴部 2 周辺を液体パッキン (シリコーンゴム) でシールし、単セルを 50 セット作製した。

次いで、得られた 50 セットの単セルを、外側面である図 1 B に示す燃料電池用セパレータ (a) の面 (裏面) と隣り合う図 3 B に示す燃料電池用セパレータ (b) の面 (裏面) のリブ部 1 及び穴部 2 周辺を液体パッキン (シリコーンゴム) でシールしながら積層し、積層体の上下を剛性のある板で挟み込み、500 KPa の面圧をかけて固定し、電池特性確認用のスタックを得た。

このようにして得られた電池特性確認用のスタックに穴 (マニホール) 部 2 を通じて水素ガス、空気及び冷却水を供給し、80℃に保持して0.4mA/cm²の電流密度で100時間の運転を行い、各単セルのそれぞれの出力電圧を測定した。表 1 に 100 時間経過後の 50 セル中の最大電圧と最小電圧を示す。なお、スタック組立中に破壊した比較例 1 及び比較例 2 については電圧の測定は行わなかった。

表 1

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2
曲げ破断歪み (%)		0. 6 7	0. 7 5	0. 6 3	0. 5 6	0. 8 2	0. 4 8
圧縮弾性率 (G P a)		1 9	9	1 9	1 8	7	2 4
ショア硬度 (－)		3 6	2 4	4 2	4 8	1 8	5 5
曲げ強度 (M P a)		5 2	4 4	7 7	6 5	3 7	7 1
組 立 安 全 性		良好	良好	良好	良好	* 1	* 2
単セルの 電圧 (V)	最大電圧	0. 7 5	0. 7 7	0. 7 4	0. 7 3	－	－
	最小電圧	0. 7 3	0. 7 6	0. 7 1	0. 6 6	－	－

20 *1 破断 (リブ圧縮変形)

*2 破壊 (割れ)

表 1 に示されるように、本発明になる実施例 1～4 のセパレータは、板厚のばらつきが少なく、曲げ破断歪み、圧縮弾性率、ショア硬度及び曲げ強度に問題は

なく、かつ100時間の運転に対しても高い出力を安定して供給でき、また電池スタックの組立保全性についても何ら問題がないことが明らかである。これに対し、比較例1～2のセパレータは、板厚のばらつきは少なく実施例1～3のセパレータと比較してもほとんど差が見られなかったが、比較例1のセパレータは、
5 ショア硬度及び曲げ強度が低いという欠点が生じ、また比較例2のセパレータは、圧縮弾性率及びショア硬度が高く、曲げ破断歪みが低いという欠点が生じていた。
実施例5

(3) 膨張黒鉛シート粉碎粉の製造

濃硫酸（濃度98重量%）15リットルを容積40リットルのガラスフラスコ
10 に入れ、ここに天然黒鉛（中国産、固定炭素99%以上、粒径50メッシュ以下）3kgを投入し、ガラス羽根を取り付けた攪拌モータ（回転数150
 min^{-1} ）で5分間攪拌した。その後、過酸化水素水（濃度35重量%）0.
75リットルを添加し、15分攪拌した後、減圧濾過で固形分を分離した。この固形分を別容器に移し10リットルの水を加え、30分間攪拌した後に再度減圧
15 濾過を実施して水を分離し、酸処理黒鉛を得た。

得られた酸処理黒鉛をホーロー製のバットに移し平らにならし、110℃に昇温した乾燥機で1時間熱処理して水分を除去した。このものをさらに800℃に昇温した加熱炉に5分間入れ、膨張黒鉛を得た。冷却後、この膨張黒鉛をロールで圧延して密度が 1.0 g/cm^3 及び厚みが1.0mmのシートに加工した。
20 得られたシートを粗粉碎機（ホソカワミクロン(株)製、ロートプレックス（商品名））で粉碎後、微粉碎機（奈良機械製作所(株)製、自由粉碎機M-3（商品名））で粉碎し、灰分が0.6重量%及び硫黄分が0.11重量%、数平均粒径が $250 \mu\text{m}$ で、嵩密度が 0.25 g/cm^3 の膨張黒鉛シート粉碎粉を得た。

(4) 成形用混合粉の製造

25 (3) で得た膨張黒鉛シート粉碎粉と粉末状フェノール樹脂（日立化成工業（株）製、商品名HR1060、数平均粒径が $20 \mu\text{m}$ ）を重量比で膨張黒鉛シート粉碎粉：粉末状フェノール樹脂が70：30の割合で配合し、Vブレンダーで乾式混合して混合粉を得た。

得られた混合粉を圧延ロールなどからなるシート成形機を用いて成形し、燃料

電池用セパレータ (a) 用として単位面積当たりの重量が 0.28 g/cm^2 、厚さが 5 mm で寸法が $200 \times 200 \text{ mm}$ の成形用シートを 11 枚得た。また燃料電池用セパレータ (b) 用として単位面積当たりの重量が 0.34 g/cm^2 、厚さが 6 mm で寸法が $200 \times 200 \text{ mm}$ の成形用シートを 11 枚得た。

5 (5) 燃料電池用セパレータの製造

次に、図 1 A、図 1 B、図 2、図 3 A、図 3 B 及び図 4 に示す形状の燃料電池用セパレータを得るために金型を使用した。このうち図 1 A、図 1 B、及び図 2 に示す形状のセパレータを得るための下型〔成形後図 1 B (裏面) となる部分〕を、成形面 (縦、横 200 mm) が平坦な型とし、上型〔成形後図 1 A (表面) となる部分〕を、突起部を有する型とした。ただし、上型は、成形後リブの高さが 0.6 mm 、リブピッチが 2 mm 、リブの幅が 2 mm 及びリブテーパが 10 度になるような形状とした。なおリブ部 1 が形成される領域は中央部の $150 \text{ mm} \times 150 \text{ mm}$ とした。

一方、図 3 A、図 3 B 及び図 4 に示す形状のセパレータを得るための下型〔成形後図 3 B (裏面) となる部分〕及び上型〔成形後図 3 A (表面) となる部分〕の両金型を突起部を有する型とした。このうち下型は、成形後リブの高さが 0.5 mm 、リブピッチが 6 mm 、リブの幅が 6 mm 及びリブテーパが 10 度になるような形状とした。また上型は、図 1 A、図 1 B 及び図 2 に示す形状のセパレータを得るための上型と同じ形状とした。

20 先ず、燃料電池用セパレータ (a) 用の上下金型及び金型外枠を 180°C に加熱し、下型に (4) で得た単位面積当たりの重量が 0.28 g/cm^2 の成形用シートを載置し、その上部に上型の突起部を有する部分を下に向けてセットし、その後 180°C 、面圧 19.6 MPa ($2 \times 10^6 \text{ kg/m}^2$) の条件で 10 分間成形し成形体を取り出した。次いで 200°C 30 分間の後硬化処理を実施し、
25 平均板厚が 2.0 mm の成形体を得た。この成形を 11 回繰り返して得られた成形体のうちの 10 枚について、平坦部 3 の所定の位置に穴部 2 を簡易打ち抜き機で打ち抜いて図 1 A、図 1 B、及び図 2 に示す形状の燃料電池用セパレータ (a) を得た。

一方、燃料電池用セパレータ (b) 用の上下金型及び金型外枠を 180°C に加

熱し、下型に（４）で得た単位面積当たりの重量が 0.34 g/cm^2 の成形用シートを載置し、以下上記と同様の工程を経て成形体を得た。得られた成形体の平均板厚は 2.6 mm であり、この成形を 11 回繰り返して得られた成形体のうちの 10 枚について、平坦部 3 の所定の位置に穴部 2 を簡易打ち抜き機で打ち抜いて図 3 A 、図 3 B 及び図 4 に示す形状の燃料電池用セパレータ（ b ）を得た。

実施例 6

実施例 5 で得た膨張黒鉛シート粉碎粉を、電気炉を用いて大気雰囲気中で 400°C 、 3 時間の熱処理を行った。この熱処理工程を追加した数平均粒径が $250\text{ }\mu\text{m}$ で、嵩密度が 0.25 g/cm^3 の膨張黒鉛シート粉碎粉を用いた以外は実施例 5 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ（ a ）及び燃料電池用セパレータ（ b ）をそれぞれ 10 枚、穴部打ち抜き未実施の成形体をそれぞれ 1 枚得た。なお、熱処理後の膨張黒鉛シート粉碎粉の灰分は 0.6 重量%及び硫黄分は 0.08 重量%であった。

実施例 7

15 実施例 5 で得た膨張黒鉛シート粉碎粉を、電気炉を用いて塩素ガスを添加した窒素雰囲気中で 2800°C 、 12 時間の熱処理を行った。この熱処理工程を追加した数平均粒径が $250\text{ }\mu\text{m}$ で、嵩密度が 0.25 g/cm^3 の膨張黒鉛シート粉碎粉を用いた以外は実施例 5 と同様の工程を経て燃料電池用セパレータ（ a ）及び燃料電池用セパレータ（ b ）をそれぞれ 10 枚、穴部打ち抜き未実施の成形体
20 体をそれぞれ 1 枚得た。なお熱処理後の膨張黒鉛シート粉碎粉の灰分は 0.002 重量%及び硫黄分は 0.01 重量%であった。

比較例 3

実施例 5 の（ 3 ）における酸処理黒鉛の作製工程で、水を加えた後の攪拌時間を 5 分間とした以外は実施例 5 と同様の工程を経て灰分が 0.6 重量%及び硫黄分が 0.4 重量%、数平均粒径が $250\text{ }\mu\text{m}$ で、嵩密度が 0.25 g/cm^3 の膨張黒鉛シート粉碎粉を得、さらに燃料電池用セパレータ（ a ）及び燃料電池用セパレータ（ b ）をそれぞれ 10 枚、穴部打ち抜き未実施の成形体をそれぞれ 1 枚得た。

比較例 4

実施例 5 の (3) における酸処理黒鉛の膨張工程で用いた容器を、ステンレスのバットとした以外は実施例 5 と同様の工程を経て灰分が 0.9 重量%及び硫黄分が 0.10 重量%、数平均粒径が $250\text{ }\mu\text{m}$ で、嵩密度が 0.25 g/cm^3 の膨張黒鉛粉碎粉を得、さらに燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパ
5 レータ (b) をそれぞれ 10 枚、穴部打ち抜き未実施の成形体をそれぞれ 1 枚得た。

比較例 5

実施例 5 の (5) における成形後の後硬化処理を省略した以外は実施例 5 と同様の工程を経て実施例 5 と同一の膨張黒鉛シート粉碎粉を得、さらに燃料電池用
10 セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) をそれぞれ 10 枚、穴部打ち抜き未実施の成形体をそれぞれ 1 枚得た。

次に、実施例 5 ～ 7 及び比較例 3 ～ 5 で得た穴部打ち抜き未実施の成形体の平坦部から、幅が 25 mm 及び長さが 50 mm の試片を 1 枚ずつ切り出した。得られた試片を純水で良く洗浄した後、純水で良く洗浄したガラス瓶に入れ、それぞ
15 れ体積の 30 倍の純水に浸漬した。

これを温度が $80 \pm 2^\circ\text{C}$ 及び湿度が 95% に保った恒温恒湿槽に入れ 100 時間保持した。冷却後の浸漬水に含有される金属不純物を誘導結合プラズマ発光分光法で測定した。さらに、各試料を燃焼させたガスを捕集液中に採取し、これをイオンクロマトグラフで分析する方法によって、浸漬水に含有される硫黄分を
20 測定した。これらの結果を表 2 に示す。

なお、浸漬に使用した純水の中の、ナトリウム、カリウム、鉄、ニッケル、マグネシウム、硫黄は全て検出下限以下であった。

また、実施例 5 ～ 7 及び比較例 3 ～ 5 で得た燃料電池用セパレータ (a) 及び燃料電池用セパレータ (b) を用いて燃料電池を組立て、電池特性を確認した。
25 先ず、白金触媒を担持したカーボン粉及びパーフルオロスルホン酸粉末をエタノールに分散させペーストを作製し、これをカーボンペーパーに均一に塗布し電極触媒層を形成した。このペーストを塗布したカーボンペーパー 2 枚を 150 mm 角に切断し、ペースト面が内側になるようにして厚さ $50\text{ }\mu\text{m}$ のパーフルオロスルホン酸膜 (デュポン社製、商品名：ナフィオン) を挟み込み、加熱しながら圧

着して膜電極複合体 (MEA) を作製した。

次に、実施例 5～7 及び比較例 3～5 で得た図 1 A、図 1 B 及び図 2 に示す形状の燃料電池用セパレータ (a) 並びに図 3 A、図 3 B 及び図 4 に示す形状の燃料電池用セパレータ (b) を各々 10 枚ずつ用い、上記 MEA を図 1 A に示す燃料電池用セパレータ (a) の面 (表面) と図 3 A に示す燃料電池用セパレータ (b) の面 (表面) の間に挟み込み、両セパレータのリブ部 1 及び穴部 2 周辺を液体パッキン (シリコーンゴム) でシールし、単セルを 10 セット作製した。

次いで、得られた 10 セットの単セルを、外側面である図 1 B に示す燃料電池用セパレータ (a) の面 (裏面) と隣り合う図 3 B に示す燃料電池用セパレータ (b) の面 (裏面) のリブ部 1 及び穴部 2 周辺を液体パッキン (シリコーンゴム) でシールしながら積層し、積層体の上下を剛性のある板で挟み込み、500 KPa の面圧をかけて固定し、電池特性確認用のスタックを得た。

このようにして得られた電池特性確認用のスタックに穴 (マニホールド) 部 2 を通じて水素ガス、空気及び冷却水を供給し、80℃に保持して0.4 mA/cm²の電流密度で、各単セルの出力電圧を測定しながら運転を行った。運転時間は100時間を目標とし、問題のなかった場合は100時間の時点での10セルの平均電圧を、問題が発生し運転が停止した場合は、その直前の時点での10セルの平均電圧を、それぞれ表 2 に示す。

表 2

		実施例 5	実施例 6	実施例 7	比較例 3	比較例 4	比較例 5
金 属 不 純 物 (ppm)	Na	3	2	ND	3	4	8
	K	2	ND	ND	2	2	4
	Fe	ND	ND	ND	ND	25	3
	Ni	ND	ND	ND	ND	10	ND
	Mg	ND	ND	ND	ND	3	ND
	合 計	5	2	ND	5	44	15
硫 黄 (ppm)		20	12	2	70	22	32
運転時間 (時間)		100	100	100	2	100	60
平均電圧 (V)		0.75	0.77	0.78	0.70	0.56	0.73

20 NDは検出されないことを示す (1 ppm未満)

表 2 に示されるように、本発明になる実施例 5～7 の燃料電池用セパレータは、浸漬水への金属不純物及び硫黄の溶出量が少なく、100時間の運転に対しても

高い出力であることが明らかである。

- これに対し、比較例 3 の燃料電池用セパレータは、浸漬水への硫黄の溶出量が多く、2 時間でセル間が短絡し、また比較例 4 の燃料電池用セパレータは、浸漬水への金属不純物及び硫黄の溶出量が多く、平均電圧が低い、さらに比較例 5 の
- 5 燃料電池用セパレータは、浸漬水への金属不純物及び硫黄の溶出量が多く、浸漬水の導電率が高く、60 時間で短絡するという欠点が生じた。

産業上の利用の可能性

- 本発明の燃料電池用セパレータは、燃料電池スタックの組立健全性に優れ及び／又は長時間運転しても電池特性の劣化が生じ難く、かつ安価な燃料電池用セパ
- 10 レータである。

また、本発明の燃料電池は、燃料電池スタックの組立健全性に優れ及び／又は長時間運転しても電池特性の劣化が生じ難く、かつ安価な燃料電池用セパレータを有する高性能な燃料電池である。

請求の範囲

1. 曲げ破断歪みが0.5%以上である燃料電池用セパレータ。
2. 圧縮弾性率が20GPa以下である請求項1記載の燃料電池用セパレータ。
- 5 3. ショア硬度が20～50の範囲である請求項1又は2記載の燃料電池用セパレータ。
4. 圧縮弾性率が20GPa以下である燃料電池用セパレータ。
5. ショア硬度が20～50の範囲である請求項4記載の燃料電池用セパレータ。
- 10 6. ショア硬度が20～50の範囲である燃料電池用セパレータ。
7. セパレータが、黒鉛及び樹脂を含む成形体である請求項1～6のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。
8. 黒鉛及び樹脂を含む成形体からなり、80℃に保った成形体体積の30倍の水に100時間浸漬した後の、浸漬水中に溶出したナトリウム、カリウム、鉄、
- 15 ニッケル、マグネシウムの合計濃度が20ppm以下及び硫黄の濃度が30ppm以下である燃料電池用セパレータ。
9. セパレータが、リブ部及び平坦部を有する請求項1～8のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。
10. 黒鉛が、膨張黒鉛である請求項7又は8記載の燃料電池用セパレータ。
- 20 11. 膨張黒鉛が、膨張黒鉛シート粉碎粉である請求項10記載の燃料電池用セパレータ。
12. 樹脂が、熱硬化性樹脂である請求項7又は8記載の燃料電池用セパレータ。
13. セパレータが、リブ部及び平坦部以外に穴部を有する請求項1～12のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。
- 25 14. 請求項1～13のいずれかに記載の燃料電池用セパレータを用いた燃料電池。
15. 固体高分子型である請求項14記載の燃料電池。

FIG. 1A

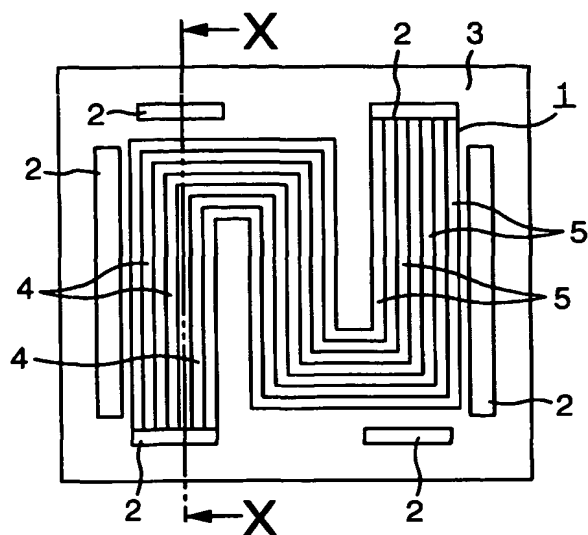


FIG. 1B

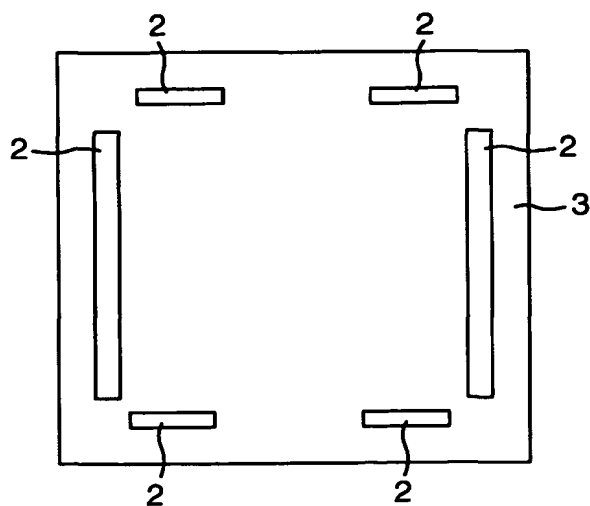
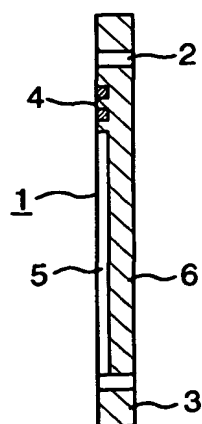


FIG. 2



2 / 2

FIG. 3A

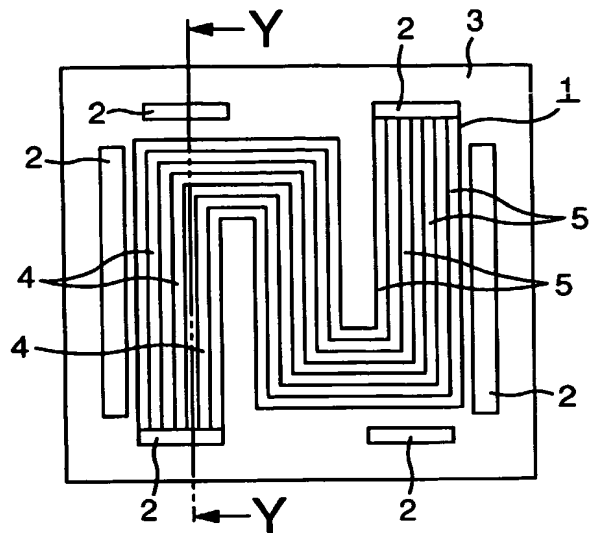


FIG. 3B

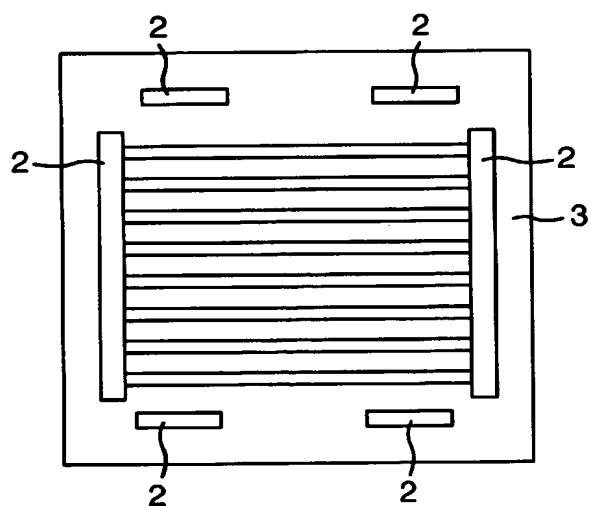
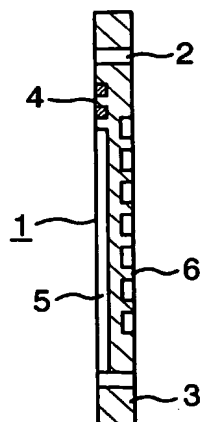


FIG. 4



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/13453

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ H01M8/02, 8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ H01M8/02, 8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2000-100453 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 07 April, 2000 (07.04.00), Full text (Family: none)	1-15 10-11
X Y	JP 2000-82476 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 21 March, 2000 (21.03.00), Full text (Family: none)	1-7, 9-15 10-11
X	JP 10-125337 A (Nippon Carbon Co., Ltd.), 15 May, 1998 (15.05.98), Full text (Family: none)	1-7, 9-10, 12-15

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
25 March, 2003 (25.03.03)

Date of mailing of the international search report
08 April, 2003 (08.04.03)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP02/13453

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2000-182630 A (Nisshinbo Industries, Inc.), 30 June, 2000 (30.06.00), Full text & EP 1011164 A2 & US 2002/0068210 A1	1-7, 9-10, 12-15 11
X Y	JP 2001-189159 A (Nisshinbo Industries, Inc.), 10 July, 2001 (10.07.01), Full text & EP 1094534 A2	1-7, 9, 12-15 10-11
X Y	JP 2001-106831 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 17 April, 2001 (17.04.01), Full text (Family: none)	1-7, 9, 12-15 10-11
X	JP 8-222241 A (Tokai Carbon Co., Ltd.), 30 August, 1996 (30.08.96), Full text (Family: none)	6-7, 9, 12-15
P, X	JP 2002-184420 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 28 June, 2002 (28.06.02), Full text (Family: none)	1-7, 9-10, 12-15
X Y	JP 2000-348740 A (Ibiden Co., Ltd.), 15 December, 2000 (15.12.00), Full text (Family: none)	8-9, 12-15 10-11
P, X	JP 2002-198063 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 12 July, 2002 (12.07.02), Claims; Par. No. [0007] (Family: none)	8-9, 12-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/13453

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

(See extra sheet)

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☒ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

Whereas for a group of inventions to fulfill the requirement of unity of invention, there must exist special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept, it is clear that in the inventions in claims 1-15 no common special technical features exist between a fuel cell separator excellent in the assembling integrity of a fuel cell stack constituting claims 1-7, 9-15 and a fuel cell separator that is not likely to deteriorate cell characteristics after an extended time of operation constituting claim 8.

Therefore, there exists among a group of inventions in claims 1-15 no special technical features for linking the group of inventions so as to form a single general inventive concept. Accordingly, it is clear that the group of inventions in claims 1-15 do not fulfill the requirement of unity of invention.

Next, the number of inventions, that is, the number of inventions described in the claims of this international application and liked so as to form a general inventive concept will be studied.

Although claims 1-3, 7, 9-15, claims 4-5 and claim 6 are linked in terms of a fuel cell separator excellent in the assembling integrity of a fuel cell stack, their technical features are mutually different ones, that is, bending breaking strain, compressive modulus of elasticity and Shore hardness within specified ranges. In addition, since this matter is disclosed in prior-art documents, such as

Document 1: JP 8-222241 A (Tokai Carbon Co., Ltd.) 1996.08.30, Table 2, Comparison example 3,

it cannot constitute a special technical feature, and claims 1-3, 7, 9-15, claims 4-5 and claim 6 are considered to be different inventions.

Accordingly, the claims in this international application describe four inventions classified as claims 1-3, 7, 9-15, claims 4-5, claim 6 and claim 8.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, 8/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M8/02, 8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2003年
 日本国登録実用新案公報 1994-2003年
 日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 2000-100453 A (日立化成工業株式会社) 2000.04.07, 全文 (ファミリーなし)	1-15 10-11
X Y	JP 2000-82476 A (日立化成工業株式会社) 2000.03.21, 全文 (ファミリーなし)	1-7, 9-15 10-11
X	JP 10-125337 A (日本カーボン株式会社) 1998.05.15, 全文 (ファミリーなし)	1-7, 9-10, 12-15

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

25.03.03

国際調査報告の発送日

08.04.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原 賢一

4 X

9062

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P 2000-182630 A (日清紡績株式会社)	1-7, 9-10, 12-
Y	2000. 06. 30, 全文&EP 1011164 A2 &US 2002/0068210 A1	15 11
X	J P 2001-189159 A (日清紡績株式会社)	1-7, 9, 12-15
Y	2001. 07. 10, 全文&EP 1094534 A2	10-11
X	J P 2001-106831 A (住友ベークライト株式会社)	1-7, 9, 12-15
Y	2001. 04. 17, 全文 (ファミリーなし)	10-11
X	J P 8-222241 A (東海カーボン株式会社)	6-7, 9, 12-15
	1996. 08. 30, 全文 (ファミリーなし)	
P, X	J P 2002-184420 A (三菱化学株式会社)	1-7, 9-10, 12-
	2002. 06. 28, 全文 (ファミリーなし)	15
X	J P 2000-348740 A (イビデン株式会社)	8-9, 12-15
Y	2000. 12. 15, 全文 (ファミリーなし)	10-11
P, X	J P 2002-198063 A (三菱化学株式会社)	8-9, 12-15
	2002. 07. 12, 特許請求の範囲, [0007] (ファミリーなし)	

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

特別ページ参照

1. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☒ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

請求の範囲に記載されている一群の発明が単一性の要件を満たすには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴の存在が必要であるところ、請求の範囲1-15に記載されている発明において、請求の範囲1-7, 9-15の構成を有する燃料電池スタックの組立健全性に優れた燃料電池セパレータと請求の範囲8の構成を有する長時間運転しても電池特性の劣化が生じ難い燃料電池セパレータとの間に共通する特別な技術的特徴が存在しないことは明らかである。

そうすると、請求の範囲1-15に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させるための、特別な技術的特徴は存在しないこととなる。そのため、請求の範囲1-15に記載されている一群の発明は発明の単一性を満たしていない。

次に、この国際出願の請求の範囲に記載されている、一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数、すなわち、発明の数につき検討する。

請求の範囲1-3, 7, 9-15と請求の範囲4-5と請求の範囲6は、燃料電池スタックの組立健全性に優れた燃料電池セパレータという点で一応関連しているものの、その技術的特徴は、曲げ破断歪み、圧縮弾性率、ショア硬度が特定の範囲であるというそれぞれ異なった技術的特徴である。しかも、この事項は、先行技術文献、例えば、

文献1: JP 8-222241 A (東海カーボン株式会社) 1996.08.30,
表2, 比較例3

等に記載されているため、特別な技術的特徴とはなり得ず、請求の範囲1-3, 7, 9-15と請求の範囲4-5と請求の範囲6は互いに別発明であると認める。

したがって、この国際出願の請求の範囲には、請求の範囲1-3, 7, 9-15と、請求の範囲4-5と、請求の範囲6と請求の範囲8に区分される4個の発明が記載されているものと認める。